

PCT

WELTOORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

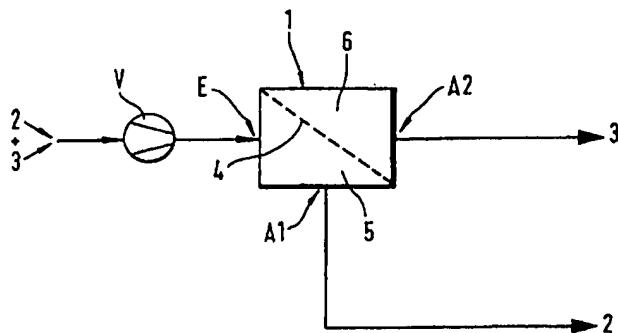


INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

| | | |
|---|----|--|
| (51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : H01M 8/06, 8/02, B60L 11/18, B60K 15/03, B01D 29/01 | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/24076 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 27. April 2000 (27.04.00) |
| (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/06854 | | (81) Bestimmungsstaaten: JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). |
| (22) Internationales Anmeldedatum: 16. September 1999 (16.09.99) | | |
| (30) Prioritätsdaten: 198 47 985.9 17. Oktober 1998 (17.10.98) DE | | Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Mit geänderten Ansprüchen.</i> |
| (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DBB FUEL CELL ENGINES GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG [DE/DE]; Neue Strasse 95, D-73230 Kirchheim/Teck-Nabern (DE). | | |
| (72) Erfinder; und | | |
| (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): POSCHMANN, Thomas [DE/DE]; Nagelstrasse 36, D-89073 Ulm (DE). ZUR MEGEDE, Detlef [DE/DE]; Allemannenstrasse 9, D-73230 Kirchheim/Teck (DE). | | |
| (74) Anwälte: KOCHER, Klaus-Peter usw.; DaimlerChrysler AG, Intellectual Property Management, FTP – C 106, D-70546 Stuttgart (DE). | | |

(54) Title: CONTAINER FOR RECEIVING AN OPERATING MEANS FOR THE OPERATION OF FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: BEHÄLTER ZUR AUFNAHME EINES BETRIEBSMITTELS FÜR DEN BETRIEB VON BRENNSTOFFZELLEN



(57) Abstract

The invention relates to a container (1) for receiving an operating means (2) for the operation of fuel cells (9), whereby the container (1) has an inlet (E) for a medium (2,3), a first outlet (A1) and a second outlet (A2), the container (1) is subdivided by at least one permeable means (4) into at least one inner area (5) on the inlet side and one inner area (6) that is distant from the inlet, and the first outlet (A1) is arranged in the inner area (5) on the inlet side and the second outlet (A2) is arranged in the inner area (6) that is distant from said inlet.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft einen Behälter (1) zur Aufnahme eines Betriebsmittels (2) für den Betrieb von Brennstoffzellen (9), wobei der Behälter (1) einen Eingang (E) für ein Medium (2, 3), einen ersten Ausgang (A1) und einen zweiten Ausgang (A2) aufweist, der Behälter (1) durch mindestens ein Durchlaßmittel (4) zumindest in einen eingangsseitigen (5) und einen eingangsfernen Innenraum (6) unterteilt ist und der erste Ausgang (A1) im eingangsseitigen Innenraum (5) und der zweite Ausgang (A2) im eingangsfernen Innenraum (6) angeordnet ist.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

| | | | | | | | |
|----|------------------------------|----|-----------------------------------|----|---|----|--------------------------------|
| AL | Albanien | ES | Spanien | LS | Lesotho | SI | Slowenien |
| AM | Armenien | FI | Finnland | LT | Litauen | SK | Slowakei |
| AT | Österreich | FR | Frankreich | LU | Luxemburg | SN | Senegal |
| AU | Australien | GA | Gabun | LV | Lettland | SZ | Swasiland |
| AZ | Aserbaidschan | GB | Vereinigtes Königreich | MC | Monaco | TD | Tschad |
| BA | Bosnien-Herzegowina | GE | Georgien | MD | Republik Moldau | TG | Togo |
| BB | Barbados | GH | Ghana | MG | Madagaskar | TJ | Tadschikistan |
| BE | Belgien | GN | Guinea | MK | Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan |
| BF | Burkina Faso | GR | Griechenland | ML | Mali | TR | Türkei |
| BG | Bulgarien | HU | Ungarn | MN | Mongolei | TT | Trinidad und Tobago |
| BJ | Benin | IE | Irland | MR | Mauretanien | UA | Ukraine |
| BR | Brasilien | IL | Israel | MW | Malawi | UG | Uganda |
| BY | Belarus | IS | Island | MX | Mexiko | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| CA | Kanada | IT | Italien | NE | Niger | UZ | Usbekistan |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan | NL | Niederlande | VN | Vietnam |
| CG | Kongo | KE | Kenia | NO | Norwegen | YU | Jugoslawien |
| CH | Schweiz | KG | Kirgisistan | NZ | Neuseeland | ZW | Zimbabwe |
| CI | Côte d'Ivoire | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | PL | Polen | | |
| CM | Kamerun | KR | Republik Korea | PT | Portugal | | |
| CN | China | KZ | Kasachstan | RO | Rumänien | | |
| CU | Kuba | LC | St. Lucia | RU | Russische Föderation | | |
| CZ | Tschechische Republik | LI | Liechtenstein | SD | Sudan | | |
| DE | Deutschland | LK | Sri Lanka | SE | Schweden | | |
| DK | Dänemark | LR | Liberia | SG | Singapur | | |

Behälter zur Aufnahme eines Betriebsmittels
für den Betrieb von Brennstoffzellen

Die Erfundung betrifft einen Behälter zur Aufnahme eines Betriebsmittels für den Betrieb von Brennstoffzellen.

Energie in Brennstoffzellen wird durch eine kontrollierte Reaktion zwischen Wasserstoff und Sauerstoff gewonnen, bei dem an einer Membran innerhalb der Brennstoffzelle Wasserstoff- und Sauerstoffionen zu Wasser gebunden werden. Es ist bekannt, die Betriebsmittel gasförmig aus Tanks der Brennstoffzelle zuzuführen. Auch ist bekannt, das Betriebsmittel Sauerstoff aus der Umgebungsluft zu gewinnen.

Besonders bei der Verwendung von Brennstoffzellen in nicht-stationären Anlagen, wie etwa Fahrzeugen, bestehen sowohl Einschränkungen bezüglich dem zur Verfügung stehenden Raum als auch Sicherheitsbedenken hinsichtlich des Mitföhrens und/oder Lagerns größerer Volumina von Wasserstoffgas. Ebenso ist es vor allem für Brennstoffzellenfahrzeuge notwendig, eine ausreichend flächendeckende Versorgung mit Betriebsmitteln, insbesondere Wasserstoff, zu gewährleisten.

Es wurde bereits vorgeschlagen, den notwendigen Wasserstoff aus einem wasserstoffhaltigen oder kohlenwasserstoffhaltigen Betriebsmittel zu gewinnen. Bevorzugt wird etwa flüssiges Methanol verwendet, wobei der Wasserstoff zur Reaktion günstigerweise in einem Gaserzeugungssystem durch Wasserdampf-Methanolreformierung gewonnen wird.

Ein wesentlicher Vorteil bei der Verwendung von Methanol besteht darin, daß Methanol an Tankstellen mit wesentlich weniger Aufwand verfügbar gemacht werden kann als beispielsweise Wasserstoffgas. Prototypen von Brennstoffzellenfahrzeugen werden mit chemisch hochreinem Methanol betrieben, da unerwünschte Beimengungen im Betriebsmittel chemisch aktive Bereiche vergiften können. Dagegen muß bei einem wirtschaftlichen Betrieb von Brennstoffzellenfahrzeugen, bei denen Methanol an Tankstellen getankt werden kann, wegen den üblichen Transportwegen und Transportmethoden mit einem höheren Verschmutzungsgrad des Methanols gerechnet werden, als dies in den verschiedenen chemisch aktiven Bereichen der Brennstoffzellen verträglich ist.

Es ist die Aufgabe der Erfindung, einen Behälter zur Aufnahme eines Betriebsmittels für Brennstoffzellen verfügbar zu machen, welcher auch für Methanol mit geringem Reinheitsgrad geeignet ist.

Diese Aufgabe wird durch die Merkmale des unabhängigen Anspruchs gelöst. Weiter Vorteile und Ausgestaltungen der Erfindung gehen aus den weiteren Ansprüchen und der Beschreibung hervor.

Ein erfindungsgemäßer Behälter weist zumindest einen Eingang für Medien, vorzugsweise Betriebsmittel, einen ersten Ausgang und einen zweiten Ausgang auf, wobei der Behälter durch mindestens ein Durchlaßmittel zumindest in einen eingangsseitigen und einen eingangsfernen Innenraum unterteilt ist und wobei der erste Ausgang im eingangsseitigen Innenraum und der zweite Ausgang im eingangsfernen Innenraum angeordnet ist.

In einer bevorzugten Ausführung ist das Durchlaßmittel zum Abtrennen von Verunreinigungen des Betriebsmittels vorgesehen.

-3-

In einer weiteren bevorzugten Ausführung ist das Durchlaßmittel im eingangsseitigen Innenraum mit einer ersten Art des Betriebsmittels und im eingangsfernen Innenraum mit einer zweiten Art des Betriebsmittels in Kontakt, wobei die erste Art des Betriebsmittels einen geringeren Reinheitsgrad aufweist als die zweite Art des Betriebsmittels.

In einer weiteren bevorzugten Ausführung weist die erste Art des Betriebsmittels eine andere chemische Zusammensetzung auf als die zweite Art des Betriebsmittels.

In einer weiteren bevorzugten Ausführung ist das Durchlaßmittel im eingangsseitigen Innenraum mit Betriebsmittel und im eingangsfernen Innenraum mit Verunreinigungen des Betriebsmittels in Kontakt.

Vorteilhaft ist, wenn das Durchlaßmittel eine semipermeable Membran und/oder ein Molekularsieb und/oder einen Keramikkörper und/oder ein Partikelfilter aufweist.

Zweckmäßig ist, im eingangsfernen Innenraum des Behälters eine Verbindung zu einer Vakuumpumpe vorzusehen. Durch eine einseitige Reduktion des Partialdrucks ist ein erhöhter Durchsatz des das Durchlaßmittel durchsetzenden Mediums möglich.

Eine weitere zweckmäßige Ausgestaltung ist, im ausgangsseitigen Bereich des Behälters eine Verbindung zu einer Spüleinrichtung vorzusehen. Der Durchsatz des das Durchlaßmittel durchsetzenden Mediums kann durch Spülen des eingangsfernen Innenraums mit einem Spülmedium erhöht werden.

In einer besonders bevorzugten Ausgestaltung weist das Betriebsmittel Methanol auf. Günstig ist vorzusehen, daß das gereinigte Methanol einem Gaserzeugungssystem zur

-4-

Wasserstoffgewinnung zuführbar ist. Weiterhin günstig ist, daß die Verunreinigungen einer katalytischen Brennereinheit zuführbar sind. Damit lassen sich aus der Methanolreinigung gewonnene Kohlenwasserstoff-Verunreinigungen vorteilhaft für die Gewinnung von Prozeßwärme für etwaige Reformer, Verdampfer und/oder Gasreinigungseinheiten verwenden.

Bevorzugte ist die Verwendung des Behälters in einem Brennstoffzellenfahrzeug.

Eine weitere bevorzugte Verwendung des Behälters betrifft die Verwendung in einer Tankanlage für Brennstoffzellenfahrzeuge. In diesem Fall kann gereinigtes oder zumindest vorgereinigtes Betriebsmittel in das Fahrzeug abgefüllt werden.

Die Erfindung ist nachstehend anhand einer Zeichnung näher beschrieben, wobei

Fig. 1 eine Prinzipdarstellung einer Anordnung mit einem Durchlaßmittel gemäß der Erfindung,

Fig. 2 eine Ausgestaltung einer erfindungsgemäßen Anordnung mit einem Durchlaßmittel gemäß der Erfindung,

Fig. 3 eine weitere Ausgestaltung einer erfindungsgemäßen Anordnung mit einem Durchlaßmittel gemäß der Erfindung und

Fig. 4 eine weitere Ausgestaltung einer erfindungsgemäßen Anordnung zeigt.

Im folgenden wird die Erfindung anhand eines Behälters in einem Brennstoffzellenfahrzeug beschrieben, bei dem Methanol als Betriebsmittel verwendet wird. Die Erfindung ist jedoch nicht auf diesen Anwendungsfall beschränkt,

-5-

sondern kann auch bei stationären Brennstoffzellensystemen oder nicht-stationären Brennstoffzellensystemen eingesetzt werden. Weiterhin sind auch andere wasserstoffhaltige flüssige oder gasförmige Medien statt Methanol verwendbar.

Für einen Großserien- und Flotteneinsatz von Brennstoffzellenfahrzeugen muß eine entsprechende Tankstelleninfrastruktur für geeignete Betriebsmittel, vorzugsweise Methanol, geschaffen werden. Da jedoch damit zu rechnen ist, daß für längere Zeit gleichzeitig Fahrzeuge mit Verbrennungsmotoren betrieben werden, ist davon auszugehen, daß der Ferntransport und die Regionalverteilung von Methanol über Pipelines und/oder Tankfahrzeuge erfolgt, über die auch Benzin und Diesel transportiert werden.

Daher ist mit einer entsprechenden Verunreinigung des Methanols mit höheren Kohlenwasserstoffen, etwa Alkane, Alkene, Aromate und anderen bis zu einem Anteil von einigen Volumenprozent(vol%), insbesondere bis zu 2 vol%, zu rechnen. Diese Kohlenwasserstoffe können zu einer Reduzierung der Aktivität des Reformierungskatalysators führen, mit dem Wasserstoff aus Methanol gewonnen werden soll und müssen daher vor dem Reformierungsprozeß aus dem Methanol entfernt werden.

Eine bevorzugte Lösung besteht darin, dergestalt verunreinigtes Methanol mit Hilfe eines Durchlaßmittels, insbesondere einer Membran, zu reinigen, welche insbesondere polare von unpolaren Stoffen trennen kann. Vorteilhafte Membranmaterialien sind Polymere, Molekularsiebe und/oder poröse Keramiken. Geeignet sind Durchlaßmittel, insbesondere Membranen, welche für einen Stoff ein höheres Durchlaßvermögen als für einen anderen Stoff aufweisen.

Der besondere Vorteil ist, daß eine Reinigung des Betriebsmittels vorzugsweise in einem

-6-

Brennstoffzellenfahrzeug erfolgen kann. Alternativ kann auch eine entsprechende Reinigung des Betriebsmittels direkt an Tankstellen, z.B. in Zapfsäulen erfolgen. Insbesondere bei Methanol als Betriebsmittel werden als Verunreinigungen höhere Kohlenwasserstoffe extrahiert, welche vorteilhaft vor Ort der weiteren Verwendung in Ottokraftstoffen zugeführt werden können.

Eine weitere bevorzugte Lösung besteht darin, eine Membran zu verwenden, an welcher eine chemische Umsetzung von einem Stoffgemisch zum Betriebsmittel stattfinden kann, insbesondere kann dafür ein Molekularsieb verwendet werden.

In Fig. 1 ist eine Prinzipdarstellung einer Anordnung mit einem Durchlaßmittel gemäß der Erfindung als Detailansicht skizziert. In einem Behälter 1 wird Methanol mit etwaigen Verunreinigungen 3 als vorzugsweise flüssiges Betriebsmittel 2 durch einen Eingang E zugeführt. Im Eingangsbereich kann ein Element V, vorzugsweise ein Ventil und/oder eine Pumpe, vorgesehen sein. Im Innenraum des Behälters 1 ist ein Durchlaßmittel 4 so angeordnet, das der Innenraum des Behälters 1 in mindestens zwei Bereiche, einem eingangsseitigen Innenraum 5 und einem eingangsfernen Innenraum 6 unterteilt wird. Im eingangsseitigen Innenraum 5 ist ein erster Ausgang A1, im eingangsfernen Innenraum 6 ist ein zweiter Ausgang A2 angeordnet, durch welche Ausgänge gereinigtes Betriebsmittel 2 und/oder Verunreinigungen 3 aus dem Behälter 1 entnehmbar sind.

Ist das Durchlaßmittel 4 durchlässiger für Verunreinigungen 3 des Betriebsmittels 2, können die Verunreinigungen 3 durch das Durchlaßmittel 4 permeieren und durch den Ausgang A2 abgeführt werden. Das Betriebsmittel 2 bleibt als Raffinat zurück und kann über den Ausgang A1 entnommen werden. Um den Durchsatz des Permeats zu erhöhen, kann zweckmäßigerweise der eingangsfernen Innenraum 6 mit einer Vakuumpumpe oder einer Spülvorrichtung, vorzugsweise einem Spülgas, verbunden werden. Durch den verringerten

-7-

Partialdruck des Permeats im eingangsfernen Innenraum 6 kann der Durchsatz des Permeats durch das Durchlaßmittel 4 gesteigert werden.

Es ist jedoch auch möglich, ein Durchlaßmittel 4 einzusetzen, welches selektiv bevorzugt das Betriebsmittel 2 permeieren lässt. In diesem Fall kann das Betriebsmittel 2 aus dem Ausgang A2 und die Verunreinigungen 3 aus dem Ausgang A1 entnommen werden.

In Fig. 2 ist eine vorteilhafte Ausgestaltung einer erfindungsgemäßen Anordnung in einem Brennstoffzellen-Betriebssystem dargestellt. Methanol 2 mit Verunreinigungen 3 gelangt über ein Ventil V in den Eingang E des Behälters 1, welcher wie in Fig. 1 beschreiben, aufgebaut ist. Durchlaßmittel 4 unterteilt den Innenraum in einen eingangsseitigen Innenraum 5 und einen eingangsfernen Innenraum 6. Verunreinigungen 3 permeieren durch das Durchlaßmittel 4 und werden über den Ausgang A2 abgeführt. Die Verunreinigungen 3 werden sodann in eine katalytische Brennereinheit 7 geleitet und unter Zufuhr von Luft verbrannt. Die entstehende Wärme steht als Prozeßwärme für verschiedene Prozesse im System zur Verfügung.

Durch den Ausgang A1 im eingangsseitigen Innenraum 5 wird gereinigtes Methanol 2 einem Gaserzeugungssystem 8 zugeführt, dort mit zugeführten Wasser und/oder Wasserdampf befeuchtet und reformiert. Der aus dem Methanol gewonnene Wasserstoff wird dann einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenstapel 9 zugeführt.

In Fig. 3 ist eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung dargestellt. Methanol 2 mit Verunreinigungen 3 gelangt über ein Ventil oder eine Pumpe V in den Eingang E des Behälters 1, welcher wie in Fig. 1 und Fig. 2 beschreiben, aufgebaut ist. Durchlaßmittel 4 unterteilt den Innenraum in einen eingangsseitigen Innenraum 5 und einen eingangsfernen Innenraum 6. Durch den Ausgang A1 im eingangsseitigen

-8-

Innenraum 5 wird gereinigtes Methanol 2 einem Gaserzeugungssystem 8 zugeführt, dort mit zugeführten Wasser und/oder Wasserdampf befeuchtet und reformiert. Der aus dem Methanol gewonnene Wasserstoff wird dann einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenstapel 9 zugeführt.

Verunreinigungen 3 permeieren dagegen durch das Durchlaßmittel 4 und werden über den Ausgang A2 abgeführt. Um den Durchsatz der Verunreinigungen 3 zu erhöhen, wird vorzugsweise das Verfahren der Pervaporation eingesetzt. Der Permeand erfährt bei der Pervaporation eine Phasenumwandlung von flüssig nach gasförmig. Die Triebkraft für die Pervaporation einer Komponente ist wie bei anderen Membranverfahren der Gradient ihres chemischen Potentials. Bei der Pervaporation ist dieser Gradient bevorzugt über die Absenkung des Partialdrucks auf der Permeatseite unter den zur Betriebstemperatur gehörenden Sättigungsdampfdruck zu erreichen, wodurch es zu einer Verdampfung des Permeats bei der Desorption kommt. Zweckmäßigerweise wird der eingangsferne Innenraum 6 des Behälters 1 daher mit einer Vakuumpumpe 10 verbunden, welche den eingangsfernen Innenraum 6 evakuiert. Der Strom der abgetrennten Verunreinigungen 3 wird dann einer Heizeinrichtung 11 zum Vorwärmen der Verunreinigungen 3 zugeführt, welcher auch Abgas aus der Brennstoffzelle 9 und heißes Abgas aus dem katalytischen Brenner 7 zum Wärmetausch mit den Verunreinigungen 3 zugeführt wird. Die erwärmten Verunreinigungen 3 werden aus der Heizeinrichtung 11 dem katalytischen Brenner 7 zugeführt, bzw. abgekühltes Abgas aus der Heizeinrichtung 11 abgeführt.

In Fig. 4 ist eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung dargestellt. Der Aufbau entspricht im wesentlichen dem Aufbau der Fig. 3. Methanol 2 mit Verunreinigungen 3 gelangt über ein Ventil V in den Eingang E des Behälters 1. Durchlaßmittel 4 unterteilt den Innenraum in einen eingangsseitigen Innenraum 5 und einen eingangsfernen

-9-

Innenraum 6. Durch den Ausgang A1 im eingangsseitigen Innenraum 5 wird gereinigtes Methanol 2 einem Gaserzeugungssystem 8 zugeführt, dort mit zugeführten Wasser und/oder Wasserdampf befeuchtet und reformiert. Der aus dem Methanol gewonnene Wasserstoff wird dann einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenstapel 9 zugeführt.

Verunreinigungen 3 permeieren dagegen durch das Durchlaßmittel 4 und werden über den Ausgang A2 abgeführt. Um den Durchsatz der Verunreinigungen 3 zu erhöhen, wird vorzugsweise das Verfahren der Pervaporation eingesetzt. Der Partialdruck wird in diesem Fall nicht mittels einer Vakuumpumpe erniedrigt, sondern mittels einer Spüleinrichtung, indem vorzugsweise Anodenabgas aus der Brennstoffzelle 9 als Spülgas durch den Eingang S in den eingangsfernen Innenraum 6 des Behälters eingeführt wird.

Der Strom der abgetrennten Verunreinigungen 3 wird dann einer Heizeinrichtung 11 zum Vorwärmen zugeführt, welcher auch heißes Abgas aus dem katalytischen Brenner 7 zugeführt wird. Die erwärmten Verunreinigungen 3 werden aus der Heizeinrichtung 11 dem katalytischen Brenner 7 zugeführt, bzw. abgekühltes Abgas aus der Heizeinrichtung 11 abgeführt.

Wird ein Durchlaßmittel 4 gewählt, welches selektiv für das Betriebsmittel durchlässig ist, wird entsprechend der Ausgang A2 mit dem Gaserzeugungssystem 8 verbunden, während Ausgang A1 mit der katalytischen Brennereinrichtung 7 mittelbar oder unmittelbar zu verbinden ist.

Das Durchlaßmittel 4 kann auch aus mehreren selektiv durchlässigen Körpern gebildet sein, so daß verschiedene Stoffe aus dem zugeführten Medium vom gewünschten Betriebsmittel 2 selektiv abgetrennt werden können. Vorzugsweise sind mehrere Durchlaßmittel 4 hintereinandergeschaltet angeordnet. Es ist jedoch auch

-10-

möglich, mehrere Durchlaßmittel 4 nebeneinander anzuordnen oder auch Durchlaßmittel 4 parallel und hintereinander anzuordnen. Damit kann die selektive Abtrennung mehrerer unterschiedlicher Stoffe vom Betriebsmittel optimiert werden.

Ein bevorzugtes Durchlaßmittel 4 ist ein Partikelfilter, vorzugsweise wird ein Partikelfilter zusätzlich zu einer weiteren Membran vorgesehen.

Vorteilhafte Ausführung von Durchlaßmitteln zur Abtrennung sauerstoffhaltiger Verbindungen, z.B. Methanol und/oder Dimethyläther und/oder Wasser, aus einem kohlenwasserstoffhaltigen Gemisch sind im folgenden kurz erläutert. Bevorzugtes Durchlaßmittel 4 ist eine Membran, wobei bevorzugte Membranmaterialien Celluloseacetat und/oder Celluloseacetat-Butyrat und/oder Polyethylen und/oder Polyvinyl-Acetat und/oder Polyvinylchlorid und/oder chloriertes Polyethylen und/oder Polyvinylchlorid und/oder Polyvinylidenchlorid aufweisen.

Eine bevorzugte Membran, bei der Methanol überwiegendes Permeat ist, weist zumindest Celluloseacetat und/oder Celluloseacetat-Butyrat auf.

Eine bevorzugte Membran, bei der Methanol überwiegendes Retenat ist, ist vorzugsweise aus der Gruppe von Polyvinylchlorid und/oder Polyvinylidenchlorid und/oder Polyethylen ausgewählt.

Je nach gewähltem Durchlaßmittel kann ein Zusatz von Verbindungen wie etwa Äther zur Verbesserung einer Permeation oder einer Reduzierung der Permeation von Methanol geeignet sein. Vorteilhaft kann ein Druckunterschied zwischen eingangsseitigem Innenraum 5 und einen eingangsfernem Innenraum 6 sein, wobei eingangsfern ein Unterdruck oder eingangsnah ein Überdruck erzeugt werden kann.

Patentansprüche

1. Behälter (1) zur Aufnahme eines Betriebsmittels (2) für den Betrieb von Brennstoffzellen (9), dadurch gekennzeichnet, daß der Behälter (1) einen Eingang (E) für ein Medium (2, 3), einen ersten Ausgang (A1) und einen zweiten Ausgang (A2) aufweist, daß der Behälter (1) durch mindestens ein Durchlaßmittel (4) zumindest in einen eingangsseitigen (5) und einen eingangsfernen Innenraum (6) unterteilt ist und daß der erste Ausgang (A1) im eingangsseitigen Innenraum (5) und der zweite Ausgang (A2) im eingangsfernen Innenraum (6) angeordnet ist.
2. Behälter nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Durchlaßmittel (4) zum Abtrennen von Verunreinigungen (3) des Betriebsmittels (2) vorgesehen ist.
3. Behälter nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Durchlaßmittel (4) im eingangsseitigen Innenraum (5) mit einer ersten Art des zugeführten Mediums (2, 3) und im eingangsfernen Innenraum mit einer zweiten Art des zugeführten Mediums (2) in Kontakt ist.
4. Behälter nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die erste Art des zugeführten Mediums (2, 3) einen geringeren Reinheitsgrad aufweist als die zweite Art des zugeführten Mediums (2).

-12-

5. Behälter nach Anspruch 3,
dadurch gekennzeichnet,
daß die erste Art des zugeführten Mediums (2, 3) einen
andere chemische Zusammensetzung aufweist als die zweite
Art des zugeführten Mediums (2).

6. Behälter nach Anspruch 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Durchlaßmittel (4) im eingangsfernen Innenraum mit
Verunreinigungen (3) des Betriebsmittels (2) in Kontakt
ist.

7. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Durchlaßmittel (4) zumindest eine semipermeable
Membran oder ein Molekularsieb oder einen Keramikkörper
oder ein Partikelfilter aufweist.

8. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß im eingangsfernen Innenraum (6) des Behälters (1) eine
Verbindung zu einer Vakuumpumpe (10) vorgesehen ist.

9. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß im eingangsfernen Innenraum (6) des Behälters (1) eine
Verbindung zu einer Spüleinrichtung vorgesehen ist.

10. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Betriebsmittel (2) Methanol aufweist.

11. Behälter nach Anspruch 10,
dadurch gekennzeichnet,
daß Methanol (2) einem Gaserzeugungssystem (8) zur
Wasserstoffgewinnung zuführbar ist.

-13-

12. Behälter nach Anspruch 2,
dadurch gekennzeichnet,
daß die Verunreinigungen (2) einer katalytischen
Brennereinheit (7) zuführbar sind.

13. Verwendung des Behälters in einem
Brennstoffzellenfahrzeug.

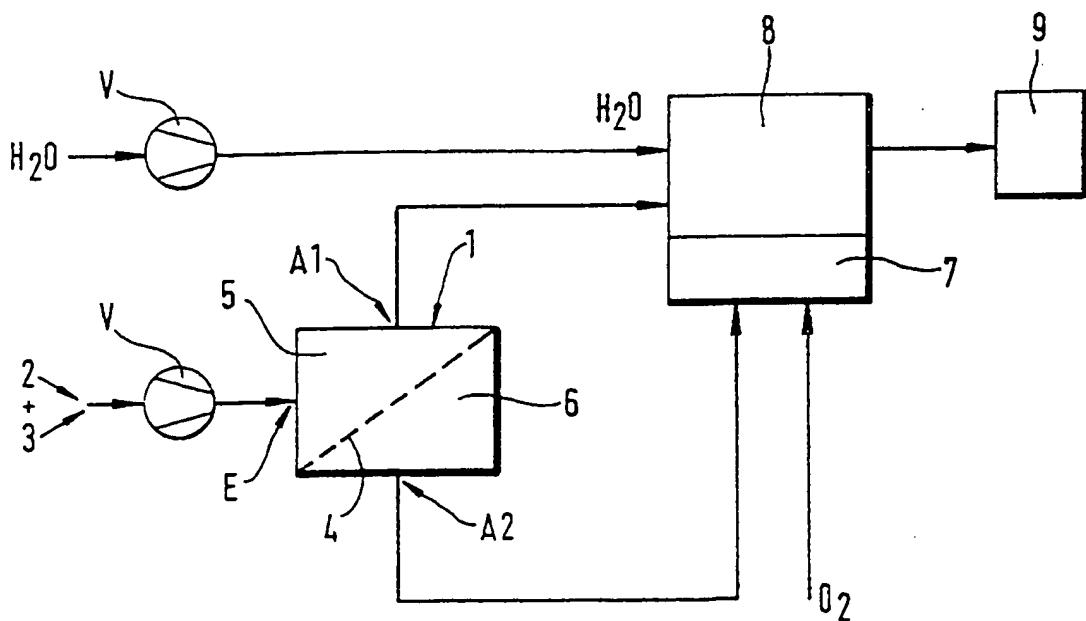
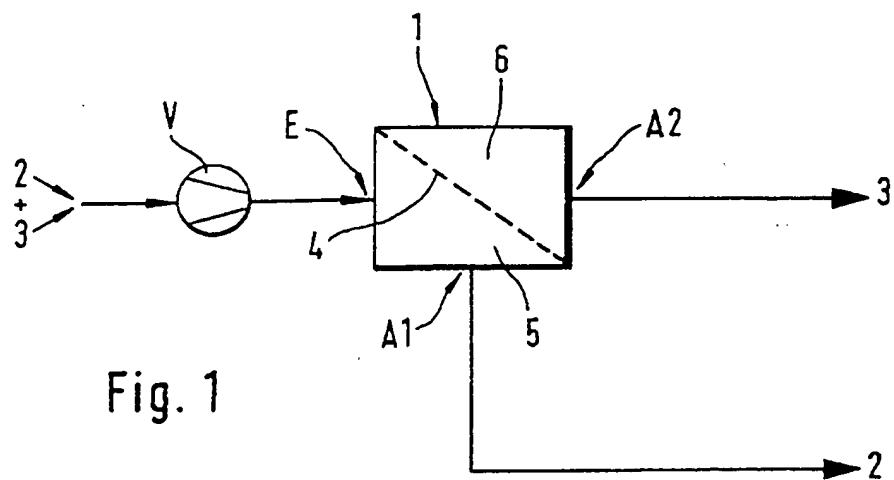
14. Verwendung des Behälters in einer Tankanlage für
Brennstoffzellenfahrzeuge.

GEÄNDERTE ANSPRÜCHE

[beim Internationalen Büro am 4 April 2000 (04.04.00) eingegangen;
ursprünglichen Anspruch 1 geändert; alle weiteren Ansprüche unverändert (1 Seite)]

1. Behälter (1) zur Aufnahme eines Betriebsmittels (2) für den Betrieb von Brennstoffzellen (9),
dadurch gekennzeichnet,
daß der Behälter (1) einen Eingang (E) für ein Medium (2, 3), einen ersten Ausgang (A1) und einen zweiten Ausgang (A2) aufweist, daß der Behälter (1) durch mindestens ein Durchlaßmittel (4) zumindest in einen eingangsseitigen (5) und einen eingangsfernen Innenraum (6) unterteilt ist, daß der erste Ausgang (A1) im eingangsseitigen Innenraum (5) und der zweite Ausgang (A2) im eingangsfernen Innenraum (6) angeordnet ist und daß das gereinigte Betriebsmittel (2) aus dem Behälter (1) einem Gaserzeugungssystem (8), welches zur Wasserstoffgewinnung zur Versorgung der Brennstoffzellen (9) vorgesehen ist, zuführbar ist.
2. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Durchlaßmittel (4) zum Abtrennen von Verunreinigungen (3) des Betriebsmittels (2) vorgesehen ist.
3. Behälter nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß das Durchlaßmittel (4) im eingangsseitigen Innenraum (5) mit einer ersten Art des zugeführten Mediums (2, 3) und im eingangsfernen Innenraum mit einer zweiten Art des zugeführten Mediums (2) in Kontakt ist.
4. Behälter nach Anspruch 3,
dadurch gekennzeichnet,
daß die erste Art des zugeführten Mediums (2, 3) einen geringeren Reinheitsgrad aufweist als die zweite Art des zugeführten Mediums (2).

1/2



2/2

Fig. 3

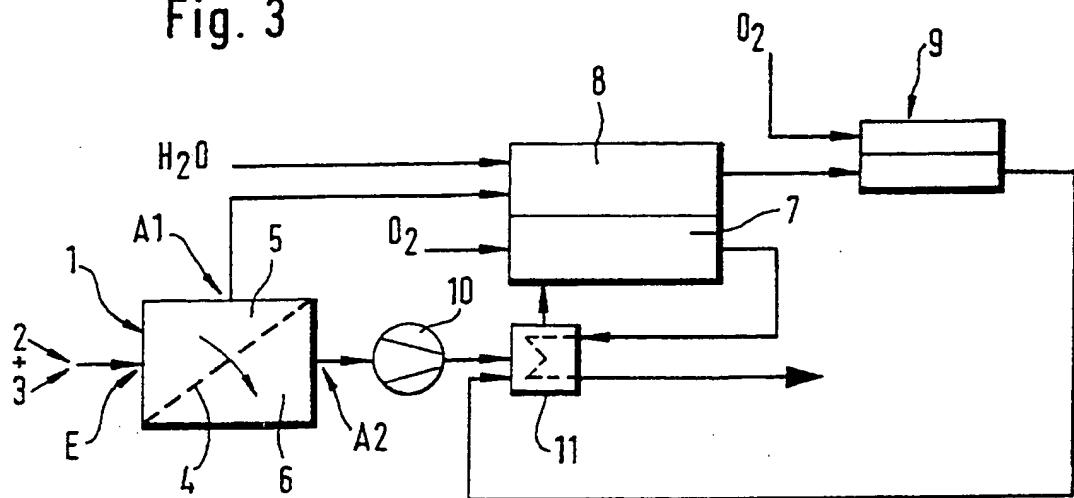
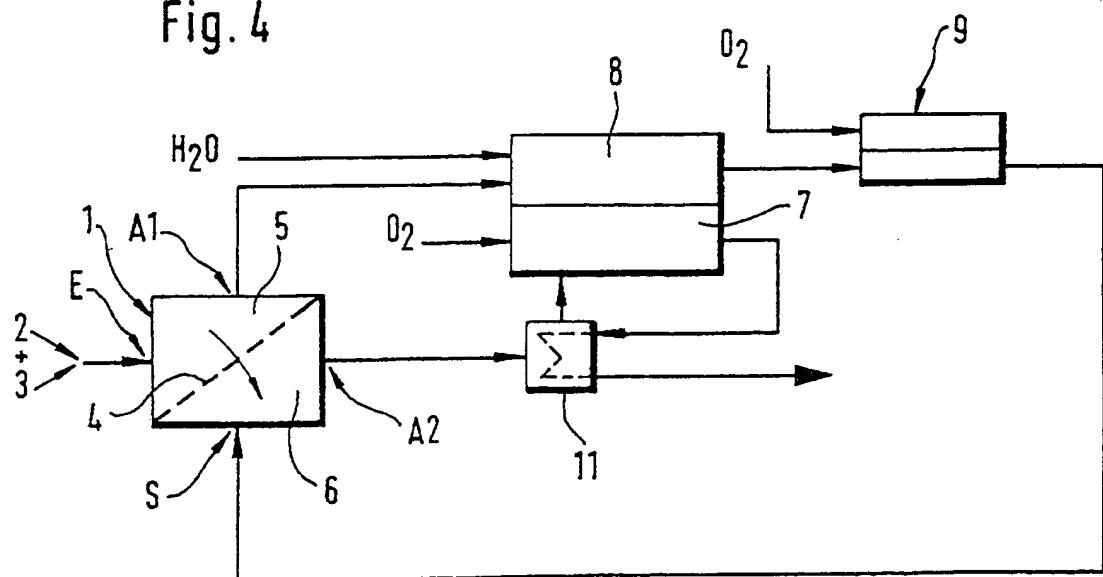


Fig. 4



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

| | |
|-------------------------|--|
| Internal Application No | |
| PCT/EP 99/06854 | |

| | | | | | |
|--|----------|----------|-----------|-----------|-----------|
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER | | | | | |
| IPC 7 | H01M8/06 | H01M8/02 | B60L11/18 | B60K15/03 | B01D29/01 |

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 IPC 7 H01M B01D B60L B60K F02M C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|---|-----------------------|
| X | DE 33 45 778 A (VOLKSWAGENWERK AG) 27 June 1985 (1985-06-27) page 5, last paragraph -page 6, paragraph 1; figures 1,2 — US 4 619 761 A (FRANZEN RUNE G) 28 October 1986 (1986-10-28) column 4, line 4 - line 13; figure 3 — EP 0 627 288 A (WERNER & PFLEIDERER) 7 December 1994 (1994-12-07) column 2, line 29 -column 3, line 30; figures 1,2 — —/— | 1-7 |
| X | | 1-3,5-7 |
| X | | 1,7 |

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the International filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

29 February 2000

Date of mailing of the International search report

08/03/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal Application No
PCT/EP 99/06854

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|---|-----------------------|
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 010, no. 234 (M-507), 14 August 1986 (1986-08-14) -& JP 61 067625 A (TOYOTA MOTOR CORP), 7 April 1986 (1986-04-07) abstract | 1,3,5,7 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29 August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 092315 A (TOKYO ELECTRIC POWER CO INC:THE;KURITA WATER IND LTD), 4 April 1997 (1997-04-04) abstract | 1-4,6,7 |
| X | GB 2 250 130 A (VICKERS SHIPBUILDING & ENG ;CJBD LTD (GB)) 27 May 1992 (1992-05-27) page 20, line 25 - line 35; figure 6 | 1-7 |
| A | EP 0 677 417 A (DAIMLER BENZ AG) 18 October 1995 (1995-10-18) column 2, line 11 - line 38; claim 1; figures 1A-1B | 10,11, 13,14 |
| A | DE 197 31 250 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 29 January 1998 (1998-01-29) column 8, line 29 - line 39; figure 3 | 10,11, 13,14 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

| | |
|-------------------------|-------------------------|
| Internal Application No | External Application No |
| PCT/EP 99/06854 | |

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | | Publication date |
|--|------------------|--|---|--|
| DE 3345778 | A 27-06-1985 | NONE | | |
| US 4619761 | A 28-10-1986 | CA SE SE | 1264304 A 463498 B 8505995 A | 09-01-1990 03-12-1990 21-06-1986 |
| EP 0627288 | A 07-12-1994 | DE DE | 4318072 A 59404921 D | 08-12-1994 12-02-1998 |
| JP 61067625 | A 07-04-1986 | NONE | | |
| JP 09092315 | A 04-04-1997 | NONE | | |
| GB 2250130 | A 27-05-1992 | AT AU AU CA DE DE DE EP WO JP NL SE US | 153801 T 651150 B 8910991 A 2096724 A,C 4193026 T 69126321 D 69126321 T 0559816 A 9210009 A 6503201 T 9120025 T 9301665 A 5401589 A | 15-06-1997 14-07-1994 25-06-1992 24-05-1992 07-10-1993 03-07-1997 02-04-1998 15-09-1993 11-06-1992 07-04-1994 01-10-1993 14-05-1993 28-03-1995 |
| EP 0677417 | A 18-10-1995 | DE | 4412453 A | 26-10-1995 |
| DE 19731250 | A 29-01-1998 | JP | 10040931 A | 13-02-1998 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern. Aktenzeichen
PCT/EP 99/06854

A. KLASSEFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01M8/06 H01M8/02 B60L11/18 B60K15/03 B01D29/01

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 H01M B01D B60L B60K F02M C01B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X | DE 33 45 778 A (VOLKSWAGENWERK AG) 27. Juni 1985 (1985-06-27) Seite 5, letzter Absatz -Seite 6, Absatz 1; Abbildungen 1,2 | 1-7 |
| X | US 4 619 761 A (FRANZEN RUNE G) 28. Oktober 1986 (1986-10-28) Spalte 4, Zeile 4 - Zeile 13; Abbildung 3 | 1-3, 5-7 |
| X | EP 0 627 288 A (WERNER & PFLEIDERER) 7. Dezember 1994 (1994-12-07) Spalte 2, Zeile 29 -Spalte 3, Zeile 30; Abbildungen 1,2 | 1,7 |
| | | -/- |

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
 - "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere bedeutsam anzusehen ist
 - "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
 - "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
 - "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
 - "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfundenseher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfundenseher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Abliegedatum des internationalen Recherchenberichts

29. Februar 2000

08/03/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internat. Aktenzeichen
PCT/EP 99/06854

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGEBEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie ^a | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------------------|--|--------------------|
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 010, no. 234 (M-507), 14. August 1986 (1986-08-14) -& JP 61 067625 A (TOYOTA MOTOR CORP), 7. April 1986 (1986-04-07) Zusammenfassung | 1,3,5,7 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29. August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 092315 A (TOKYO ELECTRIC POWER CO INC:THE;KURITA WATER IND LTD), 4. April 1997 (1997-04-04) Zusammenfassung | 1-4,6,7 |
| X | GB 2 250 130 A (VICKERS SHIPBUILDING & ENG ;CJBD LTD (GB)) 27. Mai 1992 (1992-05-27) Seite 20, Zeile 25 - Zeile 35; Abbildung 6 | 1-7 |
| A | EP 0 677 417 A (DAIMLER BENZ AG) 18. Oktober 1995 (1995-10-18) Spalte 2, Zeile 11 - Zeile 38; Anspruch 1; Abbildungen 1A-1B | 10,11, 13,14 |
| A | DE 197 31 250 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 29. Januar 1998 (1998-01-29) Spalte 8, Zeile 29 - Zeile 39; Abbildung 3 | 10,11, 13,14 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internat. PCT-Aktenzeichen

PCT/EP 99/06854

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | | Datum der Veröffentlichung | | Mitglied(er) der Patentfamilie | | Datum der Veröffentlichung |
|---|---|----------------------------|--|--|--|--|
| DE 3345778 | A | 27-06-1985 | | KEINE | | |
| US 4619761 | A | 28-10-1986 | | CA 1264304 A SE 463498 B SE 8505995 A | | 09-01-1990 03-12-1990 21-06-1986 |
| EP 0627288 | A | 07-12-1994 | | DE 4318072 A DE 59404921 D | | 08-12-1994 12-02-1998 |
| JP 61067625 | A | 07-04-1986 | | KEINE | | |
| JP 09092315 | A | 04-04-1997 | | KEINE | | |
| GB 2250130 | A | 27-05-1992 | | AT 153801 T AU 651150 B AU 8910991 A CA 2096724 A,C DE 4193026 T DE 69126321 D DE 69126321 T EP 0559816 A WO 9210009 A JP 6503201 T NL 9120025 T SE 9301665 A US 5401589 A | | 15-06-1997 14-07-1994 25-06-1992 24-05-1992 07-10-1993 03-07-1997 02-04-1998 15-09-1993 11-06-1992 07-04-1994 01-10-1993 14-05-1993 28-03-1995 |
| EP 0677417 | A | 18-10-1995 | | DE 4412453 A | | 26-10-1995 |
| DE 19731250 | A | 29-01-1998 | | JP 10040931 A | | 13-02-1998 |